

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents *will not* correct images,
Please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-107034

(43)Date of publication of application : 23.04.1996

(51)Int.Cl.

H01F 41/02
B22F 3/00
C22C 38/00
H01F 1/08

(21)Application number : 06-247327

(71)Applicant : SUMITOMO SPECIAL METALS CO LTD

(22)Date of filing : 14.09.1994

(72)Inventor : YAMASHITA OSAMU

(54) MANUFACTURE OF R-FE-B SINTERED PERMANENT MAGNET

(57)Abstract:

PURPOSE: To control the reaction between R-Fe-B alloy powder and a binder in a process prior to sintering by using as the binder a binder which is constituted of water and at least one material out of methylcellulose, polyacrylamide, and polyvinyl alcohol.

CONSTITUTION: A binder which is constituted of water and at least one material out of methylcellulose, polyacrylamide, and polyvinyl alcohol is added to R-Fe-B alloy powder (R is at least one rare earth element including Y) which has been demagnetized at a temperature ranging from 400° C to 700° C, which is higher than a Curie point. The R-Fe-B alloy powder is kneaded with binder into a slurry state. Using a spray dryer equipment, this slurry is granulated to an average grain diameter 20 μm-40 μm. This granulated powder is formed and sintered by powder metallurgy to manufacture a sintered permanent magnet. By this method, residual amounts of oxygen and carbon of a sintered body can be lessened and the fluidity and the lubricity of powder can be increased.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

21.03.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-107034

(43) 公開日 平成8年(1996)4月23日

(51) Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 F 41/02		G		
B 2 2 F 3/00		F		
C 2 2 C 38/00	3 0 3	D		
H 0 1 F 1/08				
			H 0 1 F 1/ 08	B
			審査請求 未請求 請求項の数 1	F D (全 9 頁)
(21) 出願番号	特願平6-247327		(71) 出願人	000183417
(22) 出願日	平成6年(1994)9月14日			住友特殊金属株式会社 大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号
			(72) 発明者	山下 治 大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住 友特殊金属株式会社山崎製作所内
			(74) 代理人	弁理士 押田 良久

(54) 【発明の名称】 R-F e-B系焼結永久磁石の製造方法

(57) 【要約】

【目的】 成形体の寸法精度の向上及び生産性の向上を図り、薄肉形状や小型形状でかつ優れた磁気特性を有するR-F e-B系焼結永久磁石の製造方法の提供。

【構成】 熱脱磁したR-F e-B系合金粉末に、メチルセルロース、ポリアクリルアミド、ポリビニルアルコールの単独あるいは複合したものと水とからなるバインダーを添加、混練してスラリー状となし、これをスプレードライヤー装置により造粒し、バインダーを特定してR-F e-B系合金粉末とバインダーとの反応を抑制するとともに、造粒粉の形状をできるだけ球形にして造粒粉に高い流動性を付与した、平均粒径20 μ m~400 μ mの造粒粉とすることにより、粉体の流動性が格段に向上するために、成形体の寸法精度が向上し、成形体密度のバラツキを低下させ、焼結後の寸法精度にすぐれ、薄肉形状や複雑形状でかつ高磁気特性を有する等方性あるいは異方性のR-F e-B系焼結永久磁石が効率よく得られる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 キュリー点より高い400℃～700℃の温度で脱磁処理したR-F e-B系合金粉末（RはYを含む希土類元素の少なくとも1種）に、メチルセルロース、ポリアクリルアミド、ポリビニルアルコールのうち少なくとも1種と水とからなるバインダーを添加、混練してスラリー状となし、該スラリーをスプレードライヤー装置により平均粒径20μm～400μmの球形状の造粒粉となし、該造粒粉を用いて、成形、焼結する粉末冶金法により焼結永久磁石を得ることを特徴とするR-F e-B系永久磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 この発明は、粉末冶金法によりR-F e-B系焼結磁石を製造する方法に係り、高温で脱磁処理したR-F e-B系合金粉末に特定の粘結剤と水とからなるバインダーを添加混練してスラリーとなし、これをスプレードライヤー装置により球形状の造粒粉となすことにより、成形時の粉体の流動性、潤滑性を向上させて、成形サイクルの向上、成形体の寸法精度を向上させ、薄肉形状や小型形状の焼結磁石を提供することができるR-F e-B系焼結磁石の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 今日、家電製品を初めコンピュータの周辺機器や自動車等の用途に用いられる小型モーターやアクチュエータ等には、小型化、軽量化とともに高性能化が求められており、その磁石材料も小型化、軽量化、薄肉化が要求されている。現在の代表的な永久磁石材料としては、アルニコ磁石、フェライト磁石、希土類コバルト磁石、そして、出願人が先に提案したR-F e-B系磁石（特公昭61-34242号等）が挙げられる。上記の中でも、特に、R-F e-B系磁石は、資源的に豊富な軽希土類元素などを主成分とするため、磁石を安定に供給することができ、しかも他の磁石材料に比べて磁気特性が格段にすぐれるために、各種用途に多用されている。

【0003】 R-F e-B系焼結磁石は、最大エネルギー積（BH）_{max}が40MGOeを超え、最大では50MGOeを超える極めて優れた磁気特性を有するが、その優れた磁気特性を発現させるためには、所要組成からなる合金を1～10μm程度の平均粒度に粉砕することが必要となる。合金粉末の粒度を小さくすると、成形時の粉末の流動性が悪くなり、成形体密度のバラツキや成形機の寿命を低下させるとともに、焼結後の寸法精度にもバラツキを生じることとなり、特に薄肉形状や小型形状の製品を得るのが困難であった。また、R-F e-B系焼結磁石は、大気中で酸化し易い希土類元素や鉄を主成分として含有するため、合金粉末の粒度を小さくすると、酸化により磁気特性が劣化する問題もあった。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 そのため、特に成形性を改良するために、成形前の合金粉末に、ポリオキシエチレンアルキルエーテル等を添加したもの（特公平4-80961号）、それらにさらにパラフィンやステアリン酸塩を添加したもの（特公平4-80962号、特公平5-53842号）、またオレイン酸を添加したもの（特公昭62-36365）等が提案された。しかし、ある程度の成形性は向上できるものの、その改善効果にも限界があり、近年要求される薄肉形状や小型形状の成形は依然困難であった。

【0005】 また、上記のバインダーや潤滑剤の添加とともに、さらに成形性を改良し、薄肉形状品や小型形状品を製造する方法として、成形前の合金粉末に飽和脂肪族カルボン酸や不飽和脂肪族カルボン酸にミリスチル酸エチルやオレイン酸からなる滑剤を添加して混練した後、造粒を行なって成形する方法（特開昭62-245604号）、あるいはパラフィン混合物に飽和脂肪族カルボン酸や不飽和脂肪族カルボン酸等を添加、混練後、造粒した後成形する方法（特開昭63-237402号）も提案されている。

【0006】 しかし、上記の方法では、粉末粒子の結合力が十分でなく、造粒粉が壊れやすいために、十分な粉末の流動性を実現することが困難であった。成形性を向上させたり、粉末粒子の結合力を高めるためには、種々バインダーや潤滑剤の添加量を増やすことが考えられるが、多量に添加すると、R-F e-B系合金粉末中のR成分とバインダーとの反応により、焼結後の焼結体の残留酸素量、残留炭素量が増加し、磁気特性の劣化を招くことになるので、添加量にも制限があった。

【0007】 また、R-F e-B系合金粉末を対象とするものではないが、Co系スーパーアロイ粉末を対象とした圧縮成形用のバインダーとして、対象合金粉末に対して、1.5～3.5wt%のメチルセルロースとさらに所定量の添加物であるグリセリンとほう酸を混合した組成が提案（USP4, 118, 480）され、また、工具用合金粉末の射出成形用のバインダーとして、特殊組成からなり、対象合金粉末に対して0.5～2.5wt%のメチルセルロースに水、グリセリン等の可塑剤、ワックスエマルジョン等の滑剤、離型剤を添加した組成が提案（特開昭62-37302）されている。しかし、それらはいずれも所定の流動性と成形体強度を確保するため、いずれも対象合金粉末に対して、上記のように例えば0.5wt%以上もの比較的多量のバインダーを使用するもので、しかも種々のバインダー添加剤の添加、例えばグリセリン等の可塑剤をメチルセルロースと同量程度添加することが不可欠であるため、射出成形や圧縮成形後、脱脂した後、焼結後でもかなりの炭素と酸素が残留し、特にこの発明の対象とするR-F e-B系焼結磁石の場合、磁気劣化を招くので、容易には適用

できない。

【0008】また、フェライトなどの酸化物粉末を対象として、平均粒度 $1\mu\text{m}$ 以下の粉末に、バインダーとして $0.6\sim 1.0\text{wt}\%$ のポリビニルアルコールを添加したのち、スプレードライヤー装置により造粒粉を製造し、該造粒粉を成形、焼結する方法が知られている。しかし、それらはいずれも酸化物粉末に対して $0.6\text{wt}\%$ 以上もの多量のバインダーを使用するもので、脱脂処理を施したのちの焼結体にもかなりの炭素及び酸素が残留するため、非常に酸化及び炭化しやすい性質を有し、少しの酸化あるいは炭化によっても極端に磁気特性が劣化するこの発明の対象とする希土類含有合金粉末に、上記のような酸化物を対象とした方法をそのまま適用することはできない。

【0009】特に、酸化物の場合は比較的多量のバインダーを用いても大気中で脱脂、焼結できるため、脱脂、焼結時にバインダーが燃焼してある程度の残留炭素の抑制を図ることができるが、この発明の対象とする希土類含有合金粉末の場合は、酸化により磁気特性が劣化するため大気中で脱脂、焼結することができないので、多量のバインダー添加は得られる焼結磁石の磁気特性に致命的な悪影響を及ぼすこととなる。

【0010】このように、R-Fe-B系焼結磁石の製造方法において、成形前の合金粉末に、種々のバインダーや潤滑剤を添加したり、さらに造粒を行なって、成形性を改良する試みが種々提案されてはいるが、いずれの方法によっても、近年要求されるような、薄肉形状や小型形状でかつ優れた磁気特性を有するR-Fe-B系焼結永久磁石を製造するのは困難であった。

【0011】この発明は、粉末冶金法によりR-Fe-B系焼結永久磁石を製造する方法において、合金粉末とバインダーとの反応を抑制し、焼結体の残留酸素量、残留炭素量を低減させると共に、成形時の粉体の流動性、潤滑性を向上させて、成形体の寸法精度の向上及び生産性の向上を図り、薄肉形状や小型形状でかつ優れた磁気特性を有するR-Fe-B系焼結永久磁石の製造方法の提供を目的とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】発明者らは、R-Fe-B系合金粉末とバインダーとの反応を抑制でき、焼結体の残留酸素量、残留炭素量を低減させる方法を種々検討した結果、バインダーとして、メチルセルロース、ポリアクリルアミド、ポリビニルアルコールのうち少なくとも1種と水とからなるバインダーを用いることにより、焼結前の工程におけるR-Fe-B系合金粉末とバインダーとの反応を抑制することができ、焼結後の焼結体の残留酸素量、残留炭素量を大幅に低減できることを知見した。

【0013】また、上記バインダーが、メチルセルロース、ポリアクリルアミド、ポリビニルアルコールをそれ

ぞれ単独で用いる場合、その添加量を $0.5\text{wt}\%$ 以下としても、成形時に金型へ粉末を供給するためのフィーダー内における振動にも十分耐えられる程度の一次粒子の粒子間結合力と、十分な流動性及び成形体強度を得ることができること、メチルセルロース、ポリアクリルアミド、ポリビニルアルコールをそれぞれ複合した場合には、その量を $0.4\text{wt}\%$ 以下としても上記と同様な作用効果が得られること、さらに、必要に応じて使用する滑剤も $0.3\text{wt}\%$ 以下と極少量でよく、総バインダー中の炭素含有量を大幅低減できることを知見した。

【0014】さらに、スプレードライヤー処理後の造粒粉の2次粒子の形状、大きさが不規則になり易いことに鑑み、種々検討した結果、R-Fe-B系合金粉末と上記のバインダーとを添加、混練してスラリー状となし、該スラリーをスプレードライヤー装置により造粒する前に、粉末を熱処理により脱磁（いわゆる熱脱磁）して1次粒子間の磁気的な結合をなくして、スプレー噴霧時に水と水溶性バインダーのみによる表面張力だけで球形の液滴ができるようにすると同時に、2次粒子の平均粒径が $20\mu\text{m}\sim 400\mu\text{m}$ になるように造粒することによって得られた球形状の造粒粉により、成形時の粉体の流動性が格段に向上し、成形体の密度バラツキや成形機の寿命を低下させることもなく、焼結後の寸法精度にもすぐれ、薄肉形状や小型形状でかつ優れた磁気特性を有するR-Fe-B系焼結永久磁石が効率よく得られることを知見し、この発明を完成した。

【0015】すなわち、この発明は、キュリー点より高い $400^\circ\text{C}\sim 700^\circ\text{C}$ の温度で脱磁処理したR-Fe-B系合金粉末（RはYを含む希土類元素の少なくとも1種）に、メチルセルロース、ポリアクリルアミド、ポリビニルアルコールのうち少なくとも1種と水とからなるバインダーを添加、混練してスラリー状となし、該スラリーをスプレードライヤー装置により平均粒径 $20\mu\text{m}\sim 400\mu\text{m}$ の球形状の造粒粉となし、該造粒粉を用いて、成形、焼結する粉末冶金法により焼結永久磁石を得ることを特徴とするR-Fe-B系永久磁石の製造方法である。

【0016】R-Fe-B系合金粉末

この発明において、R-Fe-B系合金粉末（但しRはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種）としては、所要組成からなる単一の合金を粉砕した粉末や、異なる組成の合金を粉砕した後、混合して所要組成に調整した粉末、保磁力の向上や製造性を改善するために添加元素を加えたものなど、公知のR-Fe-B系合金粉末を用いることができる。R-Fe-B系合金粉末の製造方法も、溶解・粉化法、超急冷法、直接還元拡散法、水素含有崩壊法、アトマイズ法等の公知の方法を適宜選定することができる。

【0017】R-Fe-B系合金粉末の粒度は特に限定しないが、合金粉末の平均粒径が $1\mu\text{m}$ 未満では大気中

の酸素あるいはバインダー内の水と反応して酸化し易くなり、焼結後の磁気特性を低下させる恐れがあるため好ましくなく、また、 $10\mu\text{m}$ を超える平均粒径では粒径が大きすぎて焼結密度が95%程度で飽和し、該密度の向上が望めないため好ましくない。よって $1\sim 10\mu\text{m}$ の平均粒径が好ましい範囲である。特に好ましくは $1\sim 6\mu\text{m}$ の範囲である。

【0018】R-Fe-B系合金粉末の熱脱磁は、真空中もしくは不活性ガス雰囲気中で行うが、処理温度は基本的にはキュリー温度（成分系により異なるが、ほとんどは 400°C 以下である）よりも高い温度で処理する必要があるため、安全を見込んで 400°C 以上が望ましい。また、処理温度が 700°C を超えると成分系によっては一部粉末粒子同士が溶着する現象を起こし、造粒後の造粒粉の流動性と焼結密度の低下を招くので好ましくない。よって処理温度は $400^\circ\text{C}\sim 700^\circ\text{C}$ が好ましい範囲である。特に好ましくは $400^\circ\text{C}\sim 500^\circ\text{C}$ の範囲である。

【0019】バインダー成分

この発明において、熱脱磁したR-Fe-B系合金粉末をスラリー状にするために添加するバインダーには、メチルセルロース、ポリアクリルアミド、ポリビニルアルコールのうち少なくとも1種と水とからなるものを用いる。上記のメチルセルロース、ポリアクリルアミド、ポリビニルアルコールは少量の添加でスラリーの粘度を向上させることができると共に乾燥後においても高い結合力を保持することができ、また、添加量が少量で十分なため、粉末中の残留酸素量、炭素量を低減することができる。

【0020】バインダーとして、メチルセルロース、ポリアクリルアミド及びポリビニルアルコールをそれぞれ単独で用いる場合の含有量は、 $0.05\text{wt}\%$ 未満では造粒粉内の粒子間の結合力が弱く、成形前の給粉時に造粒粉が壊れるとともに粉体の流動性が著しく低下し、また、 $0.5\text{wt}\%$ を越えると、焼結体における残留炭素量と酸素量が増加して保磁力が下がり磁気特性が劣化するので、 $0.05\text{wt}\%\sim 0.5\text{wt}\%$ の含有量がこれらの点で好ましい。メチルセルロース、ポリアクリルアミド、ポリビニルアルコールとをそれぞれ複合して用いる場合の含有量もそれぞれ単独で用いる場合と同様に、 $0.05\text{wt}\%$ 未満では造粒粉内の粒子間の結合力が弱く、成形前の給粉時に造粒粉が壊れるとともに粉体の流動性が著しく低下し、また、 $0.4\text{wt}\%$ を超えると、焼結体における残留炭素量と酸素量が増加して保磁力が低下し磁気特性が劣化するので、 $0.05\text{wt}\%\sim 0.4\text{wt}\%$ の含有量が好ましい範囲である。

【0021】この発明において、上述のバインダーに添加する水の含有量は、 $20\text{wt}\%$ 未満では合金粉末とバインダーとを混練したスラリーの濃度が高くなって、粘度が増加しすぎるため、該スラリーを後述する攪拌機か

らスプレードライヤー装置まで供給することができず、また、 $50\text{wt}\%$ を超えるとスラリーの濃度が低くなりすぎ、攪拌機内及び攪拌機のスラリー供給パイプ内で沈殿が起こり、供給量が不安定になるとともにスプレードライヤー装置によって得られる造粒粉の平均粒径が $20\mu\text{m}$ 未満となり、さらに粒度にバラツキを生じるため、 $20\text{wt}\%\sim 50\text{wt}\%$ が好ましい範囲である。水としては、R-Fe-B系合金粉末のR成分との反応を極力抑制するために、脱酸素処理した純水、あるいは窒素などの不活性ガスでバブリング処理した水を用いることが望ましい。

【0022】また、合金粉末へのバインダーの添加、攪拌は、 $0^\circ\text{C}\sim 15^\circ\text{C}$ の温度範囲内で行うことが好ましく、合金粉末と水との酸化反応をより抑制することができる。逆に、 15°C を超える温度での攪拌は合金粉末と水との酸化反応を促進されるため好ましくない。 $0^\circ\text{C}\sim 15^\circ\text{C}$ の温度範囲内に保持するには、予め該温度に冷却した水を用いたり、攪拌容器を冷却水などによって冷却する手段などを採用することができる。

【0023】また、上述したバインダーにグリセリン、ワックスエマルジョン、ステアリン酸、フタル酸エステル、ベトリオール、グリコール等の分散剤、潤滑剤のうち少なくとも1種を添加するか、あるいはさらに、 n -オクチルアルコール、ポリアルキレン誘導体、ポリエーテル系誘導体等の消泡剤を添加すると、スラリーの分散性、均一性の向上及びスプレードライヤー装置での粉化状態が良好になり、気泡が少なく、滑り性、流動性にすぐれる球形状の造粒粉をより容易に得ることが可能になる。なお、添加する場合は、 $0.03\text{wt}\%$ 未満の含有量では造粒粉を成形後の離型性改善に効果がなく、また $0.3\text{wt}\%$ を超えると焼結体における残留炭素量と酸素量が増加して保磁力が下がり磁気特性が劣化するので、 $0.03\text{wt}\%\sim 0.3\text{wt}\%$ の含有量が好ましい。

【0024】造粒方法

この発明において、熱脱磁したR-Fe-B系合金粉末に上述したバインダーを添加、混練したスラリーは、スプレードライヤー装置によって造粒粉にする。まず、スプレードライヤー装置を用いた造粒粉の製造方法を説明すると、スラリー攪拌機からスラリーをスプレードライヤー装置に供給する、例えば、回転ディスクの遠心力で噴霧したり、加圧ノズル先端部で霧状に噴霧され、噴霧された液滴は、加熱された不活性ガスの熱風によって瞬時に乾燥されて造粒粉となり、回収部内の下部に自然落下する。

【0025】スプレードライヤー装置の構成としては、上記のディスク回転型、加圧ノズル型のいずれでもよいが、造粒するR-Fe-B系合金粉末は非常に酸化し易いために、装置のスラリー収納部内あるいは造粒粉の回収部内を不活性ガスなどで置換でき、かつその酸素濃度

を常時3%以下に保持できる密閉構造であることが好ましい。また、スプレードライヤー装置の回収部内の構成としては、回転ディスクあるいは加圧ノズルより噴霧された液滴を瞬時に乾燥させるために、回転ディスクの近傍あるいは加圧ノズルの上方に加熱された不活性ガスを噴射する噴射口を配置し、また回収部内の下部に、噴射されたガスを回収部外へ排出する排出口を設けるが、その際、予め装置外部あるいは装置に付属された加熱器で所要温度に加熱された不活性ガスの温度を低下させないように、上記噴射口を不活性ガスの温度に応じた温度、例えば60~150℃に保持することが好ましい。

【0026】すなわち、不活性ガスの温度が低下すると、噴霧された液滴を短時間で十分乾燥することができなくなるため、スラリーの供給量を減少させなければならぬ能率が低下してしまう。また、比較的大きな粒径の造粒粉を作る場合は、回転ディスクの回転数あるいは加圧ノズルの圧力を低下させるが、その際に不活性ガスの温度が低下していると、噴霧された液滴を十分乾燥することができないので、結果としてスラリーの供給量を減少させることにより、大きな粒径の造粒粉を得る場合には極端に能率が低下することになる。従って、予め加熱された不活性ガスの温度をそのまま維持しながら回収部内へ送り込むには、噴射口の温度を60~150℃に保持することが好ましく、特に100℃前後が最も好ましい。

【0027】また、不活性ガスの噴射口と排出口の温度差が小さい場合も処理能率が低下する傾向があるので、排出口の温度は50℃以下、好ましくは40℃以下、特に好ましくは常温に設定することが望ましい。不活性ガスとしては、窒素ガスやアルゴンガスが好ましく、加熱温度は60~150℃が好ましい。

【0028】造粒粉の粒度は、スプレードライヤー装置へ供給するスラリーの濃度や、その供給量、あるいは回転ディスクの回転数または加圧ノズルの圧力によって制御することができるが、平均粒径が20μm未満では、造粒粉の流動性がほとんど向上せず、また、平均粒径が400μmを超えると、粒径が大きすぎて成形時の金型内への充填密度が低下するとともに成形体密度も低下し、ひいては、焼結後の焼結体密度の低下をきたすこととなるため好ましくなく、よって、造粒粉の平均粒径は20~400μmが好ましい。特に好ましくは50~200μmである。また、ふるいによりアンダーカット、オーバーカットを行なうことにより、さらに極めて流動性に富んだ造粒粉を得ることができる。さらに、得られた造粒粉にステアリン酸亜鉛、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸アルミニウム、ポリエチレングリコール等の潤滑剤を少量添加すると、さらに流動性を向上させることができ有効である。

【0029】造粒後の工程、すなわち、成形、焼結、熱処理など条件、方法は公知のいずれの粉末冶金的手段を

採用することができる。以下に好ましい条件の一例を示す。成形は、公知のいずれの成形方法も採用できるが、圧縮成形で行なうことが最も好ましく、その圧力は、0.3~2.0Ton/cm²が好ましい。また、磁場を印加して成形する場合の磁場強度としては10~20kOeが好ましい範囲である。焼結前には、真空中で加熱する一般的な方法や、水素流気中で100~200℃/時間で昇温し、300~600℃で1~2時間程度保持する方法などにより脱バインダー処理を行なうことが好ましい。脱バインダー処理を施すことにより、バインダー中のほぼ全炭素が脱炭され、磁気特性の向上に繋がる。

【0030】なお、R元素を含む合金粉末は、水素を吸蔵しやすいために、水素流気中での脱バインダー処理後には脱水素処理を行なうことが好ましい。脱水素処理は、真空中で昇温速度は、50~200℃/時間で昇温し、500~800℃で1~2時間程度保持することにより、吸蔵されていた水素はほぼ完全に除去される。また、脱水素処理後は、引き続いて昇温加熱して焼結を行うことが好ましく、500℃を超えてからの昇温速度は任意に選定すればよく、例えば100~300℃/時間など、焼結に際して取られる公知の昇温方法を採用できる。

【0031】脱バインダー処理後の成形品の焼結並びに焼結後の熱処理条件は、選定した合金粉末組成に応じて適宜選定されるが、焼結並びに焼結後の熱処理条件としては、1000~1180℃、1~2時間保持する焼結工程、450~800℃、1~8時間保持する時効処理工程などが好ましい。

【0032】

【作用】この発明は、熱脱磁したR-Fe-B系合金粉末に、メチルセルロース、ポリアクリルアミド、ポリビニルアルコールの単独あるいは複合したものと水とからなるバインダーを添加、混練してスラリー状となし、該スラリーをスプレードライヤー装置により平均粒径20μm~400μmの流動性の高い球形状の造粒粉となし、該造粒粉を用いて、成形、焼結、熱処理することにより、バインダー自体のすぐれた流動性とも相まって、粉体の流動性が格段に向上し、成形サイクルが向上するとともに、成形体密度のバラツキや成形機の寿命を低下させることもなく、焼結後の寸法精度にもすぐれ、小型形状や薄肉形状でかつ優れた磁気特性を有するR-Fe-B系焼結磁石が得られる。

【0033】なお、この発明における造粒粉は、それ自体は等方性であるので、磁場を印加せずに成形した場合は当然のことながら等方性の成形体になるが、磁場を印加しながら成形すると、圧縮応力と磁場の作用によって、造粒粉が壊れて元の一次粒子となり、該一次粒子が磁場によって配向し、異方性の成形体が得られるので、用途に応じて等方性磁石と異方性磁石の両方を製造する

ことができるという利点も有する。さらに、この発明における造粒粉は、バインダーによって被覆されているため、大気中において酸化し難いので、成形工程における作業性が向上するという利点も有する。

【0034】

【実施例】

実施例1

Rとして、Nd:13.3原子%、Pr0.31原子%、Dy0.28原子%、Co3.4原子%、B6.5原子%、残部Fe及び不可避的不純物からなる原料を、Arガス雰囲気中で高周波溶解して、ボタン状溶製合金を得た。次に、該合金を粗粉碎した後、ジョークラッシャーなどにより平均粒度約15 μ mに粉碎し、さらに、ジェットミルにより平均粒度3 μ mの粉末を得た。該粉末を表1に示す熱脱磁条件で脱磁した後、さらに表1に示す種類及び添加量のバインダー、水、滑剤などを添加して室温で混練してスラリー状となし、該スラリーをディスク回転型スプレードライヤー装置により、不活性ガスに窒素を用い、熱風入口温度を100℃、出口温度を40℃に設定して造粒を行なった。得られた造粒粉を#350のふるいにより微粒子をアンダーカットし、また#70のふるいにより粗粒子をオーバーカットして、表1に示す平均粒度の造粒粉を得た。

【0035】該造粒粉を圧縮磁場プレス機を用いて、磁*

*場強度15kOe、圧力1ton/cm²で10mm×15mm×厚み10mmの形状に成形した後、水素雰囲気中で室温から300℃までを昇温速度100℃/時で加熱する脱バインダー処理を行ない、引き続いて真空中で1100℃まで昇温し1時間保持する焼結を行ない、さらに焼結完了後、Arガスを導入して7℃/分の速度で800℃まで冷却し、その後100℃/時の速度で冷却して550℃で2時間保持して時効処理を施して異方性の焼結体を得た。成形時の造粒粉の流動性、成形体の寸法及び密度及び得られた焼結磁石の残留酸素量、残留炭素量、磁気特性を表2に示す。なお、流動性は、内径8mmのロートの管を100gの原料粉が自然落下し通過するまでに要した時間で測定した。また、得られた全ての焼結体には、ワレ、ヒビ、変形などは全く見られなかった。

【0036】比較例1

実施例の熱脱磁前の原料粉末を用いて、実施例と同一条件でスプレー造粒した造粒粉を実施例と同一条件で処理、実験した結果を実施例とともに表2に示す。成形時の粉末の流れ性、成形体の寸法及び密度並びに得られた焼結磁石の残留酸素量、残留炭素量、磁気特性を実施例と共に表2に示す。

【0037】

【表1】

NO	熱脱磁条件			バインダー			潤滑剤		アンダーカット、オーバーカット後の平均粒径(μm)	
	熱処理温度		雰囲気	種類	添加量(wt%)	水含有量(wt%)	種類	添加量(wt%)		
	温度(℃)	時間(H)								
本発明	1	400	1	真空	ポリビニールアルコール	0.15	35	グリセリンステアリン酸	0.05 0.05	55
	2	"	"	"	メチルセルロース	0.15	35	グリセリンステアリン酸	0.07 0.05	82
	3	"	"	"	ポリビニールアルコール ポリアクリルアミド	0.08 0.07	35	グリセリンステアリン酸	0.05 0.05	68
	4	"	"	"	メチルセルロース ポリアクリルアミド	0.08 0.07	35	グリセリンステアリン酸	0.07 0.05	93
	5	700	"	"	ポリビニールアルコール	0.20	35	グリセリンステアリン酸	0.05 0.05	60
	6	400	"	"	ポリアクリルアミド	0.15	38	グリセリンステアリン酸	0.05 0.05	87
	7	"	"	"	ポリビニールアルコール メチルセルロース	0.08 0.07	35	グリセリンステアリン酸	0.07 0.05	63
	8	"	"	"	ポリビニールアルコール メチルセルロース ポリアクリルアミド	0.05 0.05 0.05	35	グリセリンステアリン酸	0.07 0.05	74
比較例	9	-	-	-	ポリビニールアルコール	0.15	35	グリセリンステアリン酸	0.05 0.05	45
	10	-	-	-	メチルセルロース	0.15	35	グリセリンステアリン酸	0.07 0.05	75
	11	-	-	-	ポリビニールアルコール ポリアクリルアミド	0.08 0.07	35	グリセリンステアリン酸	0.05 0.05	62
	12	-	-	-	メチルセルロース ポリアクリルアミド	0.08 0.07	35	グリセリンステアリン酸	0.07 0.05	82

【0038】

50 【表2】

	NO	流動性 (秒)	プレス特性(n=20ヶ)		焼結後の 残留C、O量		磁気特性		
			厚み寸法 (mm)	密度 (g/cc)	O (ppm)	C (ppm)	Br (kG)	iHc (kOe)	(BH)max (MGOe)
本 発 明	1	26	max : 10.26 min : 10.18	max : 4.39 min : 4.34	7200	750	12.3	12.8	35.0
	2	23	max : 10.23 min : 10.14	max : 4.41 min : 4.37	6900	650	12.4	12.3	36.1
	3	24	max : 10.26 min : 10.19	max : 4.40 min : 4.35	7300	700	12.3	12.5	35.1
	4	21	max : 10.27 min : 10.18	max : 4.41 min : 4.37	7200	710	12.3	12.0	35.2
	5	25	max : 10.25 min : 10.17	max : 4.40 min : 4.36	7100	720	12.3	12.6	35.1
	6	22	max : 10.20 min : 10.14	max : 4.40 min : 4.35	7200	720	12.3	12.5	35.3
	7	25	max : 10.21 min : 10.12	max : 4.38 min : 4.33	7000	740	12.3	13.1	36.0
	8	22	max : 10.25 min : 10.17	max : 4.42 min : 4.37	7100	730	12.3	12.6	35.8
比 較 例	9	40	max : 10.21 min : 10.03	max : 4.38 min : 4.31	7300	740	12.3	13.1	35.1
	10	37	max : 10.20 min : 10.09	max : 4.40 min : 4.32	6800	650	12.4	12.0	36.0
	11	38	max : 10.26 min : 10.11	max : 4.41 min : 4.32	7200	710	12.3	12.9	35.3
	12	34	max : 10.15 min : 10.03	max : 4.41 min : 4.33	7000	630	12.3	11.9	35.7

【0039】表2の結果から明らかなように、熱脱磁した造粒粉は熱脱磁していない造粒粉に比べて、すべて流動性がかなり向上していることがわかる。また、造粒した粉のメッシュによるアンダーカット、オーバーカット前の造粒粉の電子顕微鏡写真を図（アンダーカット前はA図、オーバーカット前B図）に示すように、図2の熱脱磁していない造粒粉（比較例No. 6）は比較的微粉が多いが、熱脱磁（400℃×1時間）した図1の造粒粉（実施例No. 1）は比較的きれいな球形になっていることがわかる。従って、熱脱磁した造粒粉の流動性がすぐれている原因は、熱脱磁していない造粒粉に比べて、2次粒子の形状が球形に近い形状になっているためである。脱磁することによって各粉末粒子間の磁気的な相互作用がないために、水とバインダーの表面張力によってのみ球形に液滴化して固化したものと考えられる。

【0040】

【発明の効果】この発明によれば、熱脱磁したR-F e-B系合金粉末に、メチルセルロース、ポリアクリルアミド、ポリビニルアルコールの単独あるいは複合したものと水とからなるバインダーと水を添加、混練してスラ

リー状となし、該スラリーをスプレードライヤー装置により造粒することにより、バインダーを特定してR-F e-B系合金粉末とバインダーとの反応を抑制するとともに、造粒粉の形状をできるだけ球形にして造粒粉に高い流動性を付与した、平均粒径20 μ m～400 μ mの造粒粉が得られ、この造粒粉を用いることによって粉体の流動性が格段に向上するために、成形体の寸法精度が向上するとともに、成形体密度のバラツキを低下させたので、焼結後の寸法精度にすぐれており、薄肉形状や小型形状でかつ高磁気特性を有する等方性あるいは異方性のR-F e-B系焼結永久磁石が効率よく得られる。

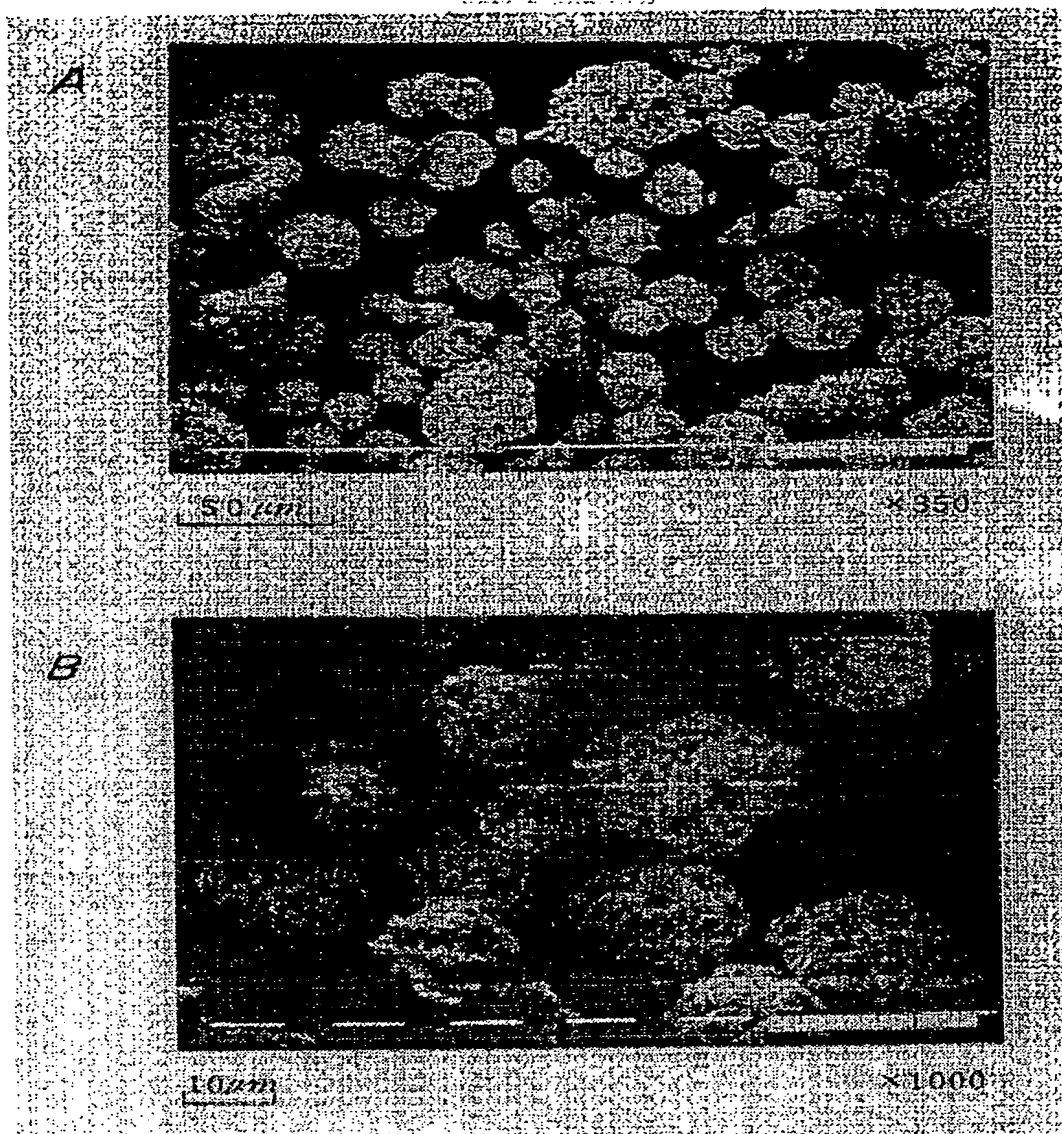
【図面の簡単な説明】

【図1】この発明による熱脱磁したR-F e-B系合金粉末の造粒粉の電子顕微鏡写真であり、Aはメッシュによるアンダーカット前の350倍、Bはオーバーカット前の1000倍である。

【図2】熱脱磁していないR-F e-B系合金粉末の造粒粉の電子顕微鏡写真であり、Aはメッシュによるアンダーカット前の350倍、Bはオーバーカット前の1000倍である。

【図1】

図面代用写真



【図2】

図面代用写真

